

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**



PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **08283492 A**(43) Date of publication of application: **29 . 10 . 96**

(51) Int. Cl.

C08L 23/16
C08K 5/54
C08L 23/00
C08L 83/05
/(C08L 23/16 , C08L 53:02 , C08L
23:08 , C08L 23:26)

(21) Application number: **07081430**(22) Date of filing: **06 . 04 . 95**(71) Applicant: **SUMITOMO BAKELITE CO LTD**

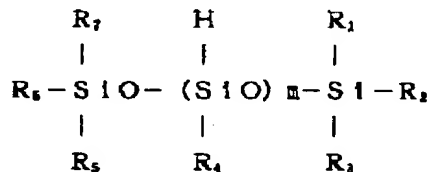
(72) Inventor: **TSUJIMOTO MOTOYOSHI**
MIYAKE SUMIYA

(54) THERMOPLASTIC ELASTOMER HAVING LOW
CREEP PROPERTY AND LOW-TEMPERATURE
IMPACT RESISTANCE

(57) Abstract:

PURPOSE: To obtain a thermoplastic elastomer by blending an ethylene/ α olefin/ nonconjugated diene copolymer rubber with a crystalline olefin-based resin, a prescribed crosslinking agent, a specific catalyst and a compatibilizing agent, excellent in flexibility and heat-resistance creep, etc., despite of being thermoplastic.

CONSTITUTION: This thermoplastic elastomer is obtained by blending (A) 100 pts.wt. of an ethylene- α -olefin-nonconjugated diene copolymer rubber with (B) 5-300 pts.wt. of a crystalline olefin-based resin, (C) 0.5-30 pts.wt. an organopolysiloxane-based crosslinking agent containing an SiH group in the molecule of the formula ((m) is 5-400; R₁ to R₇ are each H, an alkyl, an aryl, etc.), (D) 0.001-2 pts.wt. of a VIII group transition metal-based hydrosilylated catalyst and (E) 0.5-20 pts.wt. of a compatibilizing agent and dynamically heat- treating the mixture.



COPYRIGHT: (C)1996,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-283492

(43) 公開日 平成8年(1996)10月29日

| (51) Int.Cl. ⁸ | 識別記号 | 庁内整理番号 | F I | 技術表示箇所 |
|---------------------------|-------|--------|---------------|--------|
| C 0 8 L 23/16 | L C D | | C 0 8 L 23/16 | L C D |
| C 0 8 K 5/54 | K F P | | C 0 8 K 5/54 | K F P |
| C 0 8 L 23/00 | L C Q | | C 0 8 L 23/00 | L C Q |
| 83/05 | L R S | | 83/05 | L R S |
| // (C 0 8 L 23/16 | | | | |

審査請求 未請求 請求項の数9 O L (全 11 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平7-81430

(22) 出願日 平成7年(1995)4月6日

(71) 出願人 000002141

住友ベークライト株式会社

東京都品川区東品川2丁目5番8号

(72) 発明者 辻本 素芳

東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友

ベークライト株式会社内

(72) 発明者 三宅 澄也

東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友

ベークライト株式会社内

(54) 【発明の名称】 低クリープ性及び低温耐衝撃性を有する熱可塑性エラストマー

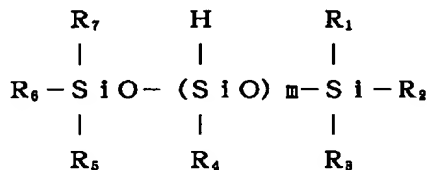
(57) 【要約】

【構成】 エチレン- α -オレフィン-非共役ジエン共重合体ゴム100重量部に対して、ポリプロピレン5～300重量部、分子内にSiH基を持つオルガノシロキサン系架橋剤0.5～30重量部、第8族遷移金属系ハイドロシリル化触媒0.001～2重量部、及び相溶化剤を0.5～20重量部を混合し、熔融混練させてなる熱可塑性エラストマー。

【効果】 安定した低クリープ性及び低温耐衝撃性を有する熱可塑性エラストマー組成物を得ることが出来る。即ち、熱可塑性でありながら、柔軟性、耐熱クリープ性能、低温耐衝撃性、機械的強度に優れ、広い温度範囲にわたって加硫ゴム同等以上のゴム弾性を長期間安定して発現できる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 エチレン- α ・オレフィン-非共役ジエン共重合体ゴム (a) 100重量部に対して、結晶性オレフィン系樹脂 (b) 5~300重量部、分子内にSiH基を持つオルガノシロキサン系架橋剤 (c) 0.5~30重量部、第8族遷移金属系ハイドロシリ化触媒 (d) 0.001~2重量部、及び相溶化剤 (e) 0.5~20重量部を混合し、動的に熱処理させてなる熱可塑性エラストマーにおいて、分子内にSiH基を持つオルガノシロキサン系架橋剤 (c) として下記の構造で表記される構造を持つ化合物を用いることを特徴とする熱可塑性エラストマー。



(1) mは5以上400以下の整数

(2) $R_1 \sim R_7$ は、水素、アルキル基、アルコキシ基、アリール基またはアリールオキシ基

【請求項2】 エチレン- α ・オレフィン-非共役ジエン共重合体ゴム (a) 100重量部に対して、結晶性オレフィン系樹脂 (b) 5~300重量部、分子内にSiH基を持つオルガノシロキサン系架橋剤 (c) 0.5~30重量部、第8族遷移金属系ハイドロシリ化触媒

(d) 0.001~2重量部、相溶化剤 (e) 0.5~20重量部、及びパラフィン系オイル (f) を30~300重量部含む請求項1記載の熱可塑性エラストマー。

【請求項3】 分子内にSiH基を持つオルガノシロキサン系架橋剤 (c) または第8族遷移金属系ハイドロシリ化触媒 (d) が液体成分、固体成分の中から選ばれる1種以上に溶解又は担持されていることを特徴とする請求項1又は2記載の熱可塑性エラストマー。

【請求項4】 相溶化剤 (e) が下記の相溶化剤 (e-1)、(e-2) の中から1種以上選ばれた請求項1、2又は3記載の熱可塑性エラストマー。

(e-1) 少なくとも2個のビニル芳香族化合物を主体とする末端ブロックAと、少なくとも1個の共役ジエン化合物を主体とする中間重合体ブロック共重合体を水素添加して得られる水添ブロック共重合体

(e-2) エチレン- α ・オレフィン共重合体

【請求項5】 相溶化剤 (e) が下記の (e-3) (e-4) (e-5) の中から1種以上選ばれた請求項1、2又は3記載の熱可塑性エラストマー。

(e-3) エポキシ基を有するポリプロピレン樹脂を必須成分とし、分子内に無水マレイン酸基を有するポリエチレン、エチレン系共重合体、スチレンブロック共重合体及びまたはその水添物、スチレンランダム共重合体及びまたはその水添物等の無水マレイン酸変性樹脂のうちから選ばれた少なくとも1種を熔融反応させてなること

を特徴とする相溶化剤

(e-4) 分子内に無水マレイン酸基を有するポリプロピレンを必須成分とし、エポキシ基を有するポリエチレン、エチレン系共重合体、スチレンブロック共重合体及びまたはその水添物、スチレンランダム共重合体及びまたはその水添物等のエポキシ変性樹脂のうちから選ばれた少なくとも1種を熔融反応させてなることを特徴とする相溶化剤

(e-5) ポリプロピレンを必須成分とし、ポリエチレン、エチレン系共重合体、スチレンブロック共重合体及びまたはその水添物、スチレンランダム共重合体及びまたはその水添物のうちから選ばれた少なくとも1種以上の樹脂とのブレンド物を過酸化存在下で動的に熱処理させてなる相溶化剤

【請求項6】 相溶化剤 (e-3) (e-4) についてはエポキシ変性樹脂と無水マレイン酸変性樹脂の比率が、また (e-5) についてはポリプロピレンと特定の群の中から選ばれた1種以上の樹脂成分の比率が10:90~90:10重量%である相溶化剤 (e) をゴム成分

(a) +樹脂成分 (b) の合計100重量部に対して0.5重量部~20重量部添加することを特徴とする請求項5記載の熱可塑性エラストマー。

【請求項7】 エチレン- α ・オレフィン-非共役ジエン共重合体 (a) がエチレン-プロピレン-エチリデンノルボルネン共重合体ゴムである請求項1、2、3、4、5又は6記載の熱可塑性エラストマー。

【請求項8】 エチレン- α ・オレフィン-非共役ジエン共重合体 (a) がエチレン/プロピレン重量比が50/50~90/10で且つヨウ素価が10以上でさらにゴム自体のムーニ粘度ML1+4 (125℃) が10以上であるエチレン-プロピレン-エチリデンノルボルネン共重合体ゴムである請求項1、2、3、4、5又は6記載の熱可塑性エラストマー。

【請求項9】 結晶性オレフィン系樹脂 (b) がMFR (ASTM-D-1238L条件、230℃) 0.1~50g/10分の範囲のポリプロピレン又はその共重合体である請求項1、2、3、4、5、6、7又は8記載の熱可塑性エラストマー。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、安定した低クリープ特性及び低温耐衝撃性を有する熱可塑性エラストマーに関するものである。更に詳しくは柔軟性に富み、広い温度範囲にわたるゴム弾性、高温クリープ性能、低温耐衝撃性、機械強度、成形加工性に優れ、かつ熱可塑性エラストマーでありながら、耐油性、耐光変色性が良好で調色性に非常に優れており、各種成形物の素材として使用できる新規な熱可塑性エラストマーに関するものである。

【0002】

【従来の技術】 近年、ゴムの軟質材料であって加硫工

程を必要とせず、熱可塑性樹脂と同様な成形加工性を有する熱可塑性エラストマーが自動車部品、家電部品、電線被覆材、医療部品、雑貨、履物等の分野で利用されている。熱可塑性エラストマーの構造の代表的な例としては特開昭61-34050等の開示されているように共重合体鎖中にハードセグメント及びソフトセグメントを交互に含有している種類のものがある。そして、これらは各セグメントの割合を変えることにより柔軟性に富むものから、剛性のあるものまで各種のグレードが製造されている。更に、安価でそして容易に入手できる原料物質から導かれた別種類の熱可塑性エラストマーもある。即ち、特公昭53-21021等の開示されているように有機過酸化物を用いて部分架橋したモノオレフィン共重合体ゴムとポリオレフィン樹脂との熱可塑性ブレンドあるいはモノオレフィン共重合体ゴムとポリオレフィン樹脂に架橋助剤として有機過酸化物を用いて熔融混練を行い、部分架橋した組成物がこれに該当する。しかしながら、前者の共重合体鎖中にハードセグメント及びソフトセグメントを交互に含有している構造を持つ熱可塑性エラストマーの場合、柔軟性のある熱可塑性エラストマーとするためにはソフトセグメントを多量に含むことが必要となる。通常、ソフトセグメントは引張強度が弱く、耐熱性、流動性、耐油性が悪いことからこのようなソフトセグメントを多量に含む柔軟性のある熱可塑性エラストマー組成物はやはり、引張強度が弱く、耐熱性、流動性、耐油性が悪いといった欠点を持ち、広範囲にわたっての各種用途に用いる事が出来ない。また、柔軟性グレードを多段階合成法により合成する場合は、ハードセグメントとソフトセグメントを別々に合成する必要があるため、重合装置が非常に複雑になるとともに、重合段階での各セグメントの性状や割合のコントロールが非常に難しく、またグレードの切り替え時に不良品が発生する事もある。さらに生成したポリマーの回収もゴムのな性状のものが多量に含まれることから非常に困難である。

【0003】後者の、成分中のモノオレフィン共重合体ゴムに部分架橋を施した構造の熱可塑性エラストマーの場合は、部分架橋であるために耐油性及び高温下での形状回復性等が不十分であるために広範囲にわたっての各種用途に用いる事が出来ない。また、有機過酸化物を用いているために、架橋と同時に有機過酸化物に起因するラジカルによりポリマー鎖の切断が起こり機械的強度の低下もみられるという欠点も有している。この欠点を克服する手段が特公昭58-46138等の開示されている。即ち架橋剤として熱反応性アルキルフェノール樹脂を用いる事によりモノオレフィン共重合体ゴムの架橋のみを優先的に進めるという手段である。この手段で得られる熱可塑性エラストマーは完全架橋であるため耐油性及び高温下での形状回復性は改善されているとはいえ、加硫ゴムに比べるとまだ不十分である。また、架橋剤と

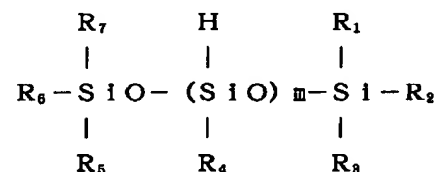
してアルキルフェノール樹脂の代わりにオルガノシロキサン化合物を用いる手法がUSP4803244に提案されている。この方法ではアルキルフェノール樹脂架橋と同様にモノオレフィン共重合体ゴムの架橋のみを優先的に進めることができ、耐油性、高温下での形状回復性及び耐光変色性等に非常に優れた材料が得られるので、調色の自由度が求められる家電用部品、電線被覆等の用途に用いる事ができる。しかしながら、この手法では相溶化剤を添加していないためゴムと樹脂の接着性が必ずしも十分でないため、低温耐衝撃性が特に要求される自動車部品の用途、例えば自動車のエアバッグカバー用材料等には使用できない。又、特公平7-15031に反応性ポリオレフィンの架橋方法として特定の構造をもつオルガノシロキサンとロジウム系触媒を用いる方法が記載されている。この特許の目的は成形物内部に泡形成をもたらさないことであるが、該特許の架橋剤とロジウム系触媒を用いた場合でも同様に、熱処理を行うとクリープ性が著しく悪化し加硫ゴム並みの低クリープ性を有するエラストマーは製造できない。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明は従来の熱可塑性エラストマー組成物では困難であった加硫ゴム並みの安定した低クリープ性及び低温衝撃性を発現させるためになされたものであり、広い温度範囲にわたって良好なゴム特性を維持しつつ、特に低温耐衝撃性に優れ、さらに広い着色自由度、低い残留重金属物等の特徴を有しているため、調色が求められる用途、衛生性、長期信頼性が求められる用途も含めての広範囲にわたっての各種用途に用いることができる熱可塑性エラストマーを提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】即ち本発明は、エチレン-α・オレフィン-非共役ジエン共重合体ゴム(a)100重量部に対して、結晶性オレフィン系樹脂(b)5~300重量部、分子内にSiH基を持つオルガノシロキサン系架橋剤(c)0.5~30重量部、第8族遷移金属系ハイドロシリル化触媒(d)0.001~2重量部、及び相溶化剤(e)0.5~20重量部を混合し、動的に熱処理させてなる熱可塑性エラストマーにおいて、分子内にSiH基を持つオルガノシロキサン系架橋剤(c)として下記の構造で表記される構造を持つ化合物を用いることを特徴とする熱可塑性エラストマーであり



(1) mは5以上400以下の整数

(2) R₁~R₇は、水素、アルキル基、アルコキシ基、

アリール基またはアリールオキシ基

又は上記組成にさらにパラフィン系オイル (f) を 30 ~ 300 重量部を用いることを特徴とする熱可塑性エラストマーである。

【0006】本発明は、架橋剤として耐光変色性及び生体適合性に優れ、ゴムを選択的に架橋する特性を有する分子内に Si H 基を持つオルガノシロキサン化合物類のうち、特に架橋密度を向上でき、且つその架橋密度を安定維持できる特定の分子構造を有するものを、また、ハイドロシリル化触媒を用いて溶融混練しながら架橋させることによりゴムの選択的な架橋を行い、さらに相溶化剤により、機械的剪断力のみでは到底達成することのできなかった、低クリープ特性及び低温耐衝撃性発現に不可欠なゴム粒子の高分散化を達成し、加えて界面の接着強度を向上させるという技術思想のもとに研究を展開し、その結果、広い温度範囲にわたって加硫ゴム同等以上の良好なゴム特性を有しつつ、低クリープ性、低温耐衝撃性、調色、良好な成形外観が求められる用途も含めての広範囲にわたっての各種用途に適用でき、しかも、通常の混練機で、剪断速度は 100 ~ 1000 / sec といった極めて常識的な溶融混練条件で達成できるという知見を見だし、その知見に基づき、さらに種々の研究を進めて本発明を完成するに至ったものである。又、本発明により製造される熱可塑性エラストマー組成物は相溶化手法を施しているため、アニーリング処理をしてもモルフォロジー変化は起こしにくく、その結果長期信頼性にも非常に優れるということを見い出した。以下に本発明についてより具体的且つ詳細な説明を行っている。

【0007】本発明で用いられるエチレン- α -オレフィン-非共役ジエン共重合体ゴム (a) は、エチレン、 α -オレフィン及び非共役ジエンからなり、 α -オレフィンは炭素数 3 ~ 15 のものが適する。非共役ジエンとしてはジシクロペンタジエン、1, 4-ヘキサジエン、エチリデンノルボルネン、及びメチレンノルボルネン等が使用できる。本発明においては入手の容易さ、耐衝撃性改良の観点から α -オレフィンとしてはプロピレンが適する。従って、EPDM が好適となる。共重合ゴムのエチレン/ α -オレフィン比は重量比で 50 / 50 ~ 90 / 10、さらに 60 / 40 ~ 80 / 20 がより好ましい。ここで、用いられるゴムのムーニ粘度、ML1+4

(125℃) は 10 ~ 120、好ましくは 40 ~ 100 の範囲から選ぶ事が出来る。このムーニ粘度はゴムの分子量と加工特性の指標となっている。ここで、ゴム自身のムーニ粘度 10 未満のものはゴム分子量が非常に小さいことを意味しており、架橋ゴムの分子量が小さくなり圧縮永久歪みが大きくなる傾向がある。逆に、120 を超えたものは成形加工性が著しく悪化するが、ゴムに

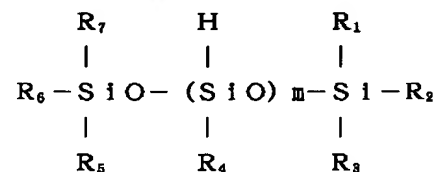
(e) 成分を予め溶融混練 (油展) し、見かけのムーニ粘度を 120 以下に調整したものが市販されている。ま

た、ゴムのヨウ素価は反応性の指標となっており値が大きいほど高活性を意味するが、本発明で用いられるゴム種では 10 ~ 30、特に 10 ~ 20 の高活性種が好ましい。

【0008】次に、本発明に用いられている結晶性オレフィン系樹脂 (b) は、得られる組成物の加工性、耐熱性向上に有効である。ここで、結晶性オレフィン系樹脂 (b) は、例えばポリエチレン、ポリプロピレンやプロピレンと他の少量の α -オレフィンのランダムまたは及びブロック共重合体、具体的にはポリプロピレン-エチレン共重合体、プロピレン-1-ヘキセン共重合体、プロピレン-4-メチル-1-ペンテン共重合体、及びポリ4-メチル-1-ペンテン、ポリブテン-1等をあげることができる。その中でもポリプロピレンまたはその共重合体が好ましく、さらにその MFR (ASTM-D-1238L 条件、230℃) は 0.1 ~ 50 g / 10 分特に 0.5 ~ 30 g / 10 分の範囲のものが好適に使用できる。結晶性オレフィン系樹脂 (b) の配合量は、ゴム成分 (a) 100 重量部に対し 5 ~ 300 重量部の範囲内で配合され、好ましくは 10 ~ 200 重量部の範囲で配合される。300 重量部を越えた配合では、得られるエラストマー状組成物の硬度が高くなり柔軟性が失われる傾向にあり、5 重量部未満の配合では加工性が悪くなる。

【0009】次に本発明で用いられるゴムの架橋剤 (c) は Si H 基を持ち且つ特に架橋密度を向上できる特定の分子構造を有するオルガノシロキサン化合物類である。本発明ではゴムの架橋法として Si H 基のゴム成分中の不飽和炭化水素への選択的な付加反応 (ハイドロシリル化) を利用している。一般に低クリープ特性を有する熱可塑性エラストマーを製造するためには、架橋密度を $1 \times 10^6 \text{ mol / ml}$ 以上にする必要があると言われていた。又、安定した低クリープ特性を有するためにはその架橋密度を安定して保持することが必要である。この架橋密度を達成するためには、種々の分子構造を有するオルガノシロキサン化合物を検討し、その結果、下記構造を有するオルガノシロキサン化合物が該当することを見い出した。

【0010】



(1) m は 5 以上 400 以下の整数

(2) $R_1 \sim R_7$ は、水素、アルキル基、アルコキシ基、アリール基またはアリールオキシ基

即ち、オルガノシロキサン化合物 1 分子で、架橋点をある程度、リジッドにするためには Si H 基を有するユニットが 5 以上 400 以下であることが必要である。即ち m が 4 以下の場合架橋点の数が少なくなるので架橋密

度が低下し、400以上ではオルガノシロキサン自体の粘度が高くなり過ぎ流動性が悪化する。またSiH基を有しないユニットが1つでも有ると、ゴムのジェン部分に付加出来ないユニットを有することになり架橋構造がリジッドとならず、特に熱履歴によりクリープ特性が著しく悪化する。なお、この構造を有するオルガノシロキサン化合物を何種類かブレンドして用いることはなんら不都合はない。

【0011】本発明に用いられる第8族遷移金属系ハイドロシリル化触媒(d)はハイドロシリル化反応を促進する触媒のうち、パラジウム、ロジウム、白金などの第8族遷移金属あるいはそれらの化合物、錯体が挙げられる。最も一般的な触媒とすればジクロロビス(アセトニトリル)パラジウム(II)、クロロトリス(トリフェニルホスフィン)ロジウム(I)、塩化白金酸等が有名である。また、架橋剤及び触媒をより高分散させるためにはゴムの架橋剤(c)、第8族遷移金属系ハイドロシリル化触媒(d)を液体成分、固体成分の中から選ばれる1種以上に溶解又は担持させたものを用いることが好ましい。具体的な方法とすれば、アセトン、イソプロパノールのような溶媒に溶解させたり、炭酸カルシウム、シリカのような無機フィラーに担持させたり、又はアルコール溶媒に溶かした状態でシリカのような無機フィラーに担持させる手法がある。ここで用いられる溶媒は特に限定されることはないが、ハイドロシリル化反応に対して比較的不活性であることが必要である。溶媒種の例とすれば、炭化水素系、アルコール系、ケトン系、エステル系等が挙げられる。調製すべき溶液の濃度は特に制限は無い。また、無機フィラーは吸着能力を有することが必要であり、炭酸カルシウム、カーボンブラック、タルク、マイカ、硫酸バリウム、天然ケイ酸、合成ケイ酸(ホワイトカーボン)、酸化チタン等が例示できる。担持触媒の調製法は公知の方法を用いることが出来る。

【0012】ここで動的架橋された熱可塑性エラストマー組成物とは、本発明で得られた組成物1gを沸騰キシレンを用いてソックスレー抽出器で10時間リフラックスし、残留物を80メッシュの金網で濾過し、メッシュ上に残留した不溶物乾燥重量(g)/組成物1g中に含まれるa成分の重量の比を100倍した値で示されるゲル含量が少なくとも30%、好ましくは50%以上(ただし、無機充填物等の不溶成分はこれに含まない)となるように架橋したものであり、かつ該架橋が熱可塑性エラストマー組成物の溶融混練中に行われることを特徴とする。このような動的架橋された熱可塑性エラストマー組成物を得るため、オルガノシロキサン系架橋剤(c)の配合量は、成分(a)100重量部に対して0.5~30重量部、好ましくは1~20重量部の中から好適に選ぶことができ、そのゲル含量を調節することができる。また触媒(d)の添加量はゴム成分100重量部に対して0.001~2重量部の触媒を任意に添加するこ

とができる。触媒として第8族遷移金属系触媒では添加量0.005~1重量部が好ましく、さらに好ましくは0.01~0.5重量部である。ここで、0.001重量部未満の場合、実用的速度で架橋が進まない。また、2重量部超では増量する効果がないばかりか失活した触媒が黒色状ブツとなり外観不良となったり、熱処理をするに好ましくない副反応(未反応のSiH基の分解等)を引き起こす傾向がある。

【0013】本発明で用いられる相溶化剤(e)とは、同一分子内にゴムと熱可塑性樹脂とそれぞれに対して親和性を持つ成分を有し、これが界面活性剤的な働きをすることにより、結果として通常の混練条件(剪断速度:100~1000/sec)で架橋されたゴムを30ミクロン以下まで微細に分散させ、また架橋されたゴムと熱可塑性樹脂との界面の接着強度を向上させ、また低温耐衝撃性を著しく改善させることを目的に添加する。一般に、機械強度及び低クリープ性はゴムの分散粒径を数~サブμm程度に分散できれば著しく向上するといわれている。上記目的に合致すれば、どのような構造のモノマー、オリゴマー、ポリマーであろうと特に限定されるものではない。相溶化剤の一般的な構造的としては同一分子内にエチレン-α・オレフィン-非共役ジェン共重合体ゴム(a)と結晶性オレフィン系樹脂(b)とそれぞれ分子相溶する成分を有することが必要であり、一般的には相溶化剤は2種以上のモノマーから重合されたブロック共重合体、ランダム共重合体、グラフト共重合体が好ましい。このような共重合体は、市販のものを用いても良いし、自ら調製することもできる。例えば、市販の共重合体の例とすれば、スチレン系共重合体が挙げられる。即ち、スチレン-ブタジエン共重合体及びその水添物(ランダム共重合体、ブロック共重合体、グラフト共重合体などすべて含まれる。)が挙げられ、より具体的にはスチレン-ブタジエン-スチレン共重合体(SBS)、水添スチレン-ブタジエン-スチレン共重合体(SEBS)、イソプレン-スチレン共重合体、水添イソプレン-スチレン共重合体(SEP)、スチレン-イソプレン-スチレン共重合体(SIS)、水添スチレン-イソプレン-スチレン共重合体(SEPS)などが挙げられる。中でも、低温時耐衝撃性を著しく改善させ、好ましく用いられるスチレン系エラストマーはSEBS、SEP、SEPSであり、中でも好ましいスチレン含量は、10~80重量%、更に好ましくは、30~70重量%であり、より好ましいのは40~70重量%である。

【0014】また、相溶化剤を調製する方法の例としては下記に示す(e-3)、(e-4)、(e-5)が挙げられる。

(e-3) エポキシ基を有するポリプロピレン樹脂を必須成分とし、分子内にカルボン酸無水物及び/またはカルボン酸基を有するポリエチレン、エチレン系共重合

体、スチレンブロック共重合体及びまたはその水添物、スチレンランダム共重合体及びまたはその水添物等のカルボン酸変性樹脂のうちから選ばれた少なくとも1種を溶融反応させてなることを特徴とする相溶化剤

(e-4) 分子内に無水マレイン酸基を有するポリプロピレンを必須成分とし、エポキシ基を有するポリエチレン、エチレン系共重合体、スチレンブロック共重合体及びまたはその水添物、スチレンランダム共重合体及びまたはその水添物等のエポキシ変性樹脂のうちから選ばれた少なくとも1種を溶融反応させてなることを特徴とする相溶化剤

(e-5) ポリプロピレンを必須成分とし、ポリエチレン、エチレン系共重合体、スチレンブロック共重合体及びまたはその水添物、スチレンランダム共重合体及びまたはその水添物のうちから選ばれた少なくとも1種以上の樹脂とのブレンド物を過酸化存在下で動的に熱処理させてなる相溶化剤

相溶化剤(e-3)(e-4)の原料として用いられる無水マレイン酸基を有する変性樹脂、エポキシ基を有する変性樹脂は、公知の技術で容易に得ることができる。即ち過酸化物等を用いてグラフト共重合する方法あるいは樹脂モノマー成分と共重合することにより得られる。またこれらは市販品を用いてもよい。本発明で用いられる無水マレイン酸基を有する変性樹脂としてエチレン・アクリル酸・無水マレイン酸3元共重合体、エチレン・エチルアクリレート・無水マレイン酸3元共重合体、エチレン・メタクリル酸・無水マレイン酸3元共重合体、無水マレイン酸をグラフトしたポリプロピレン、無水マレイン酸をグラフトしたポリエチレン、無水マレイン酸をグラフトしたエチレン-プロピレン共重合体、無水マレイン酸をグラフトしたスチレン-エチレン・ブチレン-スチレンブロック共重合体、無水マレイン酸をグラフトしたスチレン-エチレン・ブチレン-スチレンランダム共重合体等が例示される。

【0015】本発明で用いられるエポキシ変性樹脂としてはエチレン・グリシジルメタアクリレート共重合体あるいはエチレン・アクリル酸・グリシジルアクリレート3元共重合体、エチレン・アクリレート・アリルグリシジルエーテル3元共重合体、エチレン・メタクリレート・グリシジルアクリレート3元共重合体、エチレン・プロピレン・グリシジルメタアクリレート3元共重合体、グリシジルメタアクリレートをグラフトしたポリプロピレン、グリシジルメタアクリレートをグラフトしたスチレン-エチレン・ブチレン-スチレンブロック共重合体、グリシジルアクリレートをグラフトしたスチレン-エチレン・ブチレン-スチレンランダム共重合体等が例示される。

【0016】本発明の相溶化剤(e-3)(e-4)は上記の分子内に無水マレイン酸基を有する変性樹脂とエポキシ基を有する樹脂からなる組成物をバッチ式混練機

にて150~250℃で5~30分溶融反応させることにより得られる。溶融混練の際、顕著なトルク上昇が生じることから、分子内に無水マレイン酸基を有する変性樹脂とエポキシ基を有する樹脂との間に何らかの反応が生じていると考えられる。また相溶化剤(e-3)(e-4)の赤外線吸収スペクトルを調べると原料に含まれるエポキシ基、無水マレイン酸基の特性吸収が消失しており、エポキシ基と無水マレイン酸基との間に反応が生じたと考えられる。本発明の相溶化剤(e-5)はポリプロピレンを必須成分とし、ポリエチレン、エチレン-プロピレン共重合ゴム、スチレンブロック共重合体及びまたはその水添物、スチレンランダム共重合体及びまたはその水添物のうちから選ばれた少なくとも1種以上の樹脂とのブレンド物及び有機ペルオキシド、有機ペルエステル、アゾ化合物等の有機過酸化物、必要に応じてビスマレイミド系化合物のような助触媒をバッチ式混練機にて150~250℃で5~30分溶融反応させ、共架橋させることにより得られる。ここで有機過酸化物触媒の添加量はブレンド物100重量部に対して0.0001~2重量部が好適である。ここで過酸化物触媒0.0001重量部未満の場合、実用的速度で反応が進まない。また、2重量部超では増量する効果がないばかりか好ましくない副反応(ポリプロピレンの分解、ゲル化反応等)を引き起こす傾向がある。

【0017】ここで相溶化剤(e-3)(e-4)についてはエポキシ変性樹脂と無水マレイン酸変性樹脂との比率が、また、(e-5)についてはポリプロピレンと特定の群の中から選ばれた1種以上の樹脂との比率が10:90~90:10重量%、好ましくは70:30~30:70重量%、更に好ましくは60:40~40:60重量%の範囲で配合される。どちらかの成分の比率が10重量%未満では界面の接着強度改善効果が不十分となり、本発明の熱可塑性エラストマーの低温耐衝撃性を改良する効果が不十分となる傾向がある。また、相溶化剤(e)の添加量はゴム成分(a)+樹脂成分(b)の合計100重量部に対して0.5重量部~20重量部、好適には1重量部~15重量部、更に好適には2重量部~10重量部の範囲で配合される。0.5重量部未満の場合、界面張力を低下させる効果が低下する傾向があり、故に界面の接着強度改善効果が低下し、また加硫ゴムの分散粒子が大きくなる傾向があり、従って本発明の熱可塑性エラストマーの低温耐衝撃性の改良効果が不十分となり、また、成形品の外観が悪化する傾向にある。また、20重量部超では本発明の熱可塑性エラストマーの硬度が硬くなり低温耐衝撃性が悪くなるばかりかエラストマーとしてのゴム弾性を示さなくなる傾向にある。

【0018】本発明で用いるパラフィン系オイル(f)は、得られる組成物の硬度を調整し、柔軟性を与える作用を持ち、必要に応じて添加される。一般にゴムの軟

化、増容、加工性向上に用いられるプロセスオイルまたはエクステンダーオイルとよばれる鉱物油系ゴム用軟化剤は芳香族環、ナフテン環、パラフィン鎖の3者を組み合わせた混合物であり、パラフィン鎖の炭素数が全炭素数の50%以上占めるものがパラフィン系と呼ばれ、ナフテン環炭素数が30から45%のものがナフテン系、芳香環炭素数が30%を超えるものが芳香族系とされる。本発明で用いられるオイルは上記区分でパラフィン系のものが好ましく、ナフテン系、芳香族系のものは分散性、溶解性の点で好ましくない。パラフィン系ゴム用軟化剤の性状は37.8℃における動粘度が20~50 c s t、流動点が-10~-15℃および引火点が170~300℃を示す。パラフィン系オイル(f)の好ましい配合量はゴム成分(a)100重量部に対して30~300重量部であり、さらに好ましくは30~250重量部である。300重量部をこえた配合のものは、軟化剤のブリードアウトを生じやすく、最終製品に粘性を生じる恐れがあり、機械的性質を低下させる傾向がある。また、30重量部未満だと添加する意味がない。また、パラフィンオイルで油展した(a)成分が市販されており、これを用いて所定量添加する方式も好適に採用できる。

【0019】本発明で得られる熱可塑性エラストマー組成物は公知技術の有機過酸化物を用いて部分架橋した熱可塑性エラストマー組成物に比べ、機械強度及び高温での圧縮永久歪みに優れた性能をしめす組成物を与える。また、公知技術の熱反応性アルキルフェノール樹脂を用いて完全架橋した熱可塑性エラストマー組成物に比べ、耐光変色性に著しく優れた組成物を与える。また、界面の接着性が著しく改善されており、公知技術のように、塩化白金酸のような第Ⅳ族遷移金属系触媒を用いてハイドロシリル化することにより架橋させて得ただけの熱可塑性エラストマー組成物に比べ、低温耐衝撃性が著しく向上し、成形品の外観が著しく向上する。上記した成分のほかに、本発明の組成物はさらに必要に応じて、特に調色が不必要な用途には、無機充填剤を配合することも可能である。この無機充填剤は、増量剤として製品コストの低下をはかることの利益があるばかりでなく、品質改良(耐熱保形、難燃性付与等)に積極的效果を付与する利点もある。無機充填剤としては、例えば炭酸カルシウム、カーボンブラック、タルク、水酸化マグネシウム、マイカ、硫酸バリウム、天然ケイ酸、合成ケイ酸(ホワイトカーボン)、酸化チタン等があり、カーボンブラックとしてはチャンネルブラック、ファーネスブラック等が使用できる。これらの無機充填剤のうちタルク、炭酸カルシウムは経済的にも有利で好ましいものである。さらに必要に応じて、各種添加剤を添加することができる。添加剤の例をあげると、造核剤、外滑剤、内滑剤、ヒンダードアミン系光安定剤、ヒンダードフェノール系酸化防止剤、着色剤、難燃剤、シリコンオイル

(オルガノシロキサン、シランカップリング剤等)を添加しても良い。また、スチレン系ブロックコポリマー(SBC)、エチレン- α -オレフィン共重合体、熱可塑性ウレタン樹脂のような他の熱可塑性樹脂をブレンドすることもできる。

【0020】本発明の組成物を製造する方法としては、通常の樹脂組成物、ゴム組成物の製造に用いられる一般的な全ての方法を採用できる。基本的には機械的熔融混練方法であり、これらには単軸押出機、二軸押出機、バンバリーミキサー、各種ニーダー、ブラベンダー、ローラ等が用いられる。この際、各成分の添加順序には制限がなく、例えば、ゴム、樹脂成分を前もってヘンシェルミキサー、ブレンダー等の混合機で予備混合し上記の混練機で熔融混練し、次いで架橋剤、触媒成分を添加し動的架橋したり、使用するゴムのスコーチ時間が十分長い場合は触媒以外の成分を前もって熔融混練し、さらに触媒を添加し熔融混練する等の添加方法も採用できる。また、この際熔融混練する温度は180℃~300℃、剪断速度は100~1000/secのなかから好適に選ぶことが出来る。さらに、先に(a)(c)(d)

(e)成分を用いて先にゴムの架橋物を製造し、ゴム架橋物の粗砕物を残りの成分に添加し、熔融混練しても本発明の熱可塑性エラストマーを得ることができる。ゴムの架橋物を得る方法は特に限定されることなく、通常の熱硬化型樹脂組成物、熱硬化型ゴム組成物の製造に用いられるすべての方法を採用できる。上記の工程を経て製造された架橋されたゴムを粗砕するには、通常の粉碎方法で達成できる。即ち、粉碎器、特にドライアイス、液体窒素を用いた冷凍粉碎の方法が好適に用いられる。また、無機フィラー等を打粉剤として用いることもできる。この時、ニーダのようなバッチ式混練機を用いた場合は、ゴムが十分に硬化した場合は組成物は熱硬化性であり、粉碎工程を設けることなく、ニーダ内で粗砕されるので、特に好適に用いられる。

【0021】ここで得られた動的架橋したエラストマー組成物は熱可塑性であるので一般に使用される熱可塑性樹脂成形機を用いて成形することが可能であって、射出成形、押出成形、カレンダー成形、ブロー成形等の各種の成形方法が適用可能である。即ち、熔融粘度の剪断速度依存性が特に大きく、高剪断速度の射出成形領域では低粘度高流動となり、汎用樹脂と同様に容易に射出成形が出来る。また、中剪断速度の押出・ブロー成形領域ではある程度高粘度となり、これが低ドロウダウンにつながるため、押出・ブロー成形も容易である。以下、本発明を実施例によって更に詳細に説明するが、本発明は、これら実施例に限定されるものではない。

【0022】

【実施例】以下に示す実施例及び比較例において配合した各成分は以下の通りである。

<成分a(1):EPDM>

エチレン-プロピレン-エチリデンノルボルネン共重合体ゴム

出光DSM(株)製ケルタンK712

[プロピレン含量: 40重量%, ムーニ粘度ML1+4 (125℃): 63, ヨウ素価: 16, Tg: -53℃]

<成分a(2): EPDM>

油展エチレン-プロピレン-エチリデンノルボルネン共重合体ゴム

出光DSM(株)製ケルタンK509X100

[プロピレン含量: 30重量%, ムーニ粘度ML1+4 (125℃): 100, ヨウ素価: 26, Tg: -45℃, パラフィンオイル油展量: 100重量部]

<成分b(1): H-PP>

ホモタイプポリプロピレン樹脂、住友化学工業(株)製W501

[MFR (230℃) = 8.0 g/10分, 熱変形温度: 115℃]

<成分b(2): B-PP>

ブロックタイプポリプロピレン樹脂、住友化学工業(株)製AV664B

[MFR (230℃) = 5.0 g/10分, 熱変形温度: 122℃]

【0023】<成分c(1): SiH①: m=50>

日本ユニカー(株)製

<成分c(5): SiH⑤>

【0024】<成分d(1): 触媒>

安田薬品社製塩化白金酸6水和物

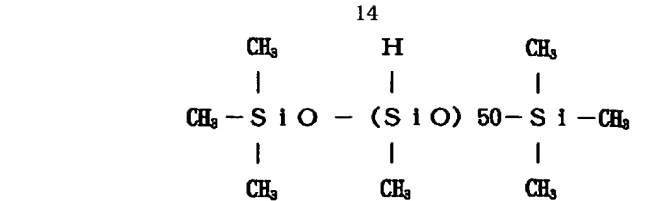
<成分d(2): 触媒>成分d(1)の3重量%2-プロパノール溶液を調製し、この溶液10gをシリカ(日本シリカー製 ニップシル VN3)100g中に担持させて調製した。

<成分d(3): 触媒>ビス-シクロオクタジエンロジウム塩1gを500g中の低密度ポリエチレン(比重: 0.923)中に熔融混練することにより調製した。

<成分e-1: SEBS>

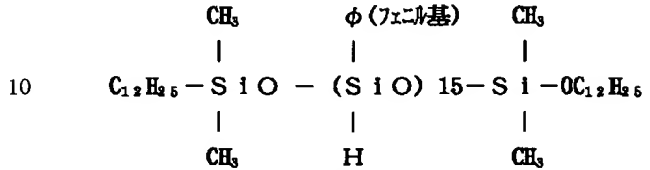
スチレン-エチレン-ブチレン-スチレン共重合体(SEBS)

旭化成工業(株)製タフテック H1041



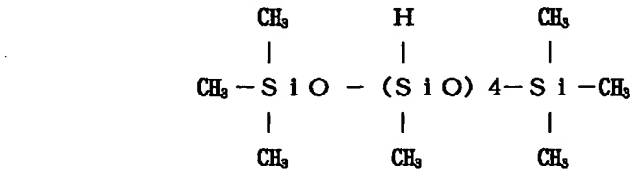
* <成分c(2): SiH②: m=15>

日本ユニカー(株)製



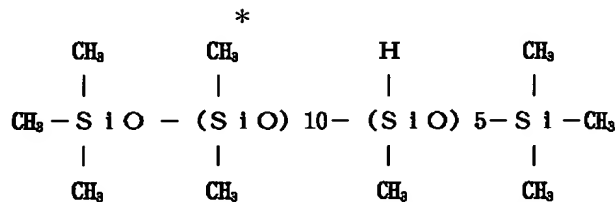
<成分c(3): SiH③>

日本ユニカー(株)製



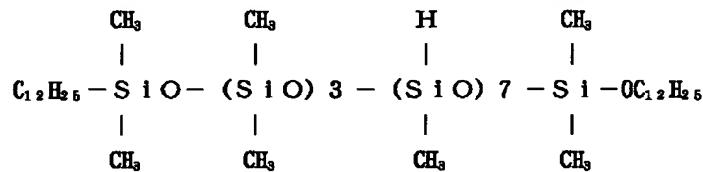
<成分c(4): SiH④>

日本ユニカー(株)製



*

※ ※日本ユニカー(株)製



<成分e-4: PP-SEBS>平均分子量4000のポリプロピレンオリゴマーの末端を無水マレイン酸変性したものの(PP-MAH)100重量部に対して、エポキシ変性スチレンブロック共重合体タフテックZ514[旭化成製]80重量部を加え、ヘンシェルミキサーで十分混合した後、ニーダにて約200℃で20分熔融混練し、ロールシート化した後室温まで冷却し、シートペレタイザーでペレット化して本発明の相溶化剤e-4を得た。相溶化剤e-4の赤外線吸収スペクトルを調べた結果、原料に含まれるエポキシ基、酸無水物基の特性吸収が消失しており、エポキシ基と酸無水物基との間に反応が生じたものと思われる。

<成分f: オイル>出光興産製ダイアナプロセスオイルPW-380[パラフィン系プロセスオイル、動粘度:

381.6 c s t (40℃)、30.1 (100℃)、平均分子量746、環分析値：CA=0%、CN=27%、CP=73%]

【0025】《実施例1～18及び比較例1～12》c成分及びd成分を除く全ての成分を十分ドライブレンドした後、ニーダにて約200℃で20分溶融混練し、ロールシート化した後室温まで冷却し、シートペレタイザーでペレット化し動的架橋する前の熱可塑性組成物を得た。このペレットに相当量のc成分及びd成分を添加配合し再び二軸混練機を使用して、800/secの剪断速度で樹脂温190～230℃になるように混練して動的架橋した熱可塑性エラストマー組成物を得た。この組成物を用い射出成形及び押出成形を行い、以下の諸物性の評価を行い、実施例については表1、表2に載せ、比較例については表3、表4に載せた。

- (1) 硬度 (JIS K6301 Aタイプ)
- (2) 引張強度TS [MPa] 及び伸びEb [%] (JIS K6301、3号ダンベル)
- (3) 圧縮永久歪みCS [%] (JIS K6301、25%圧縮 -40℃×22HR、70℃×22HR及び100℃×400HR)
- (4) 耐油性 [%] (JIS K6301、No3試験油 (潤滑油) を使用し、70℃で2時間、50×50×t2の試験片を浸漬し、浸漬前後の重量変化化 (%) を求めた)
- (5) 成形性試験 (φ50mm押出機を用いてL/D=20のスクリー、100mm×t0.5のダイスを用いてC/R=3.0、混練温度200℃、回転数100rpmにて、150×500mmのテープを作成し、目視にて表面を観察し、直径100ミクロン以上のブツを2つ以上観察した場合は×、1つ観察した場合は△、観察しなかった場合は○とした。)
- (7) 低温耐衝撃性 (75×75×t1の試験片を-60℃のドライアイスメタノール溶液に10分間浸漬後、デ*

表 1

| | 実 施 例 | | | | | |
|----------|-------|-----|-----|-----|-----|-----|
| | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 |
| 組成 (重量部) | | | | | | |
| EPDM① | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| H-PP | 20 | 100 | 270 | 20 | 50 | 50 |
| SiH① | 1 | 5 | 25 | 1 | 5 | 28 |
| 触媒① | 0.005 | 0.5 | 1.8 | | | |
| 触媒③ | | | | 7 | 7 | 7 |
| SEBS | 1 | 5 | 18 | 5 | 5 | 5 |
| OIL | | 100 | 250 | | 100 | 100 |
| 物 性 | | | | | | |
| 硬度 | 94 | 85 | 90 | 98 | 62 | 65 |
| TS (MPa) | 20 | 18 | 18 | 24 | 15 | 16 |
| Eb (%) | 250 | 300 | 400 | 200 | 570 | 550 |

* ユボン式落球衝撃試験を行い、試験後亀裂が生じなかった場合は○、亀裂が生じたものは×とした。[試験条件 振り重量：500g 先端球R：3/16 落下高さ：1m]

(8) 長期信頼性 (100℃×1000hr 処理後に(3)に準じて永久圧縮歪み測定を行った。(JIS K6301、25%圧縮 70℃×22HR) 80%以上の残率絶対値が30%以下でしかも80%以上の性能を保持した場合は○、それ以外の場合は×とした。)

10 (9) 耐光変色性 (サンシャインウェザオメーターを用いて、83℃×1000HRの暴露処理を行い、処理前と比べ色差が3以内であれば○、3を超える場合は×とした。)

【0026】また、比較例1、2では動的架橋を有機過酸化物 [ジクミルペルオキシド (DCP)] を2重量部及びジビニルベンゼン (DVB) 3重量部を用いた他は実施例と同様な方法で行った。さらに比較例3、4では動的架橋を熱反応性アルキルフェノール樹脂 [Schenectady Chemicals社 SP1045] を5重量部及び架橋助剤 [塩化第1錫] 2重量部を用いた他は実施例と同様な方法で行った。また、比較例5～12では架橋剤としてオルガノシロキサンを用いて、触媒として実施例に示した成分d (3)を用いた。この結果から、本発明の特定構造を持つオルガノシロキサン化合物を用いて動的架橋し、相溶化剤を添加した熱可塑性エラストマー組成物は公知技術の有機ペルオキシド系を配合して動的架橋した熱可塑性エラストマー組成物よりも機械強度及び70℃、100℃の圧縮永久歪みさらに耐油性に優れ、加硫ゴム同等以上の組成物を与えることが明らかになった。また、低温耐衝撃性にも優れていることがわかった。そしてさらに、本発明の組成物は耐光変色性が良好であるので調色の自由度が大きく、安定した低クリープ性を有し、長期信頼性に著しく優れることが判明した。

【0027】

| 17 | | | | | | 18 |
|-------------|----|----|----|----|----|----|
| CS (%) -40℃ | 19 | 19 | 21 | 21 | 21 | 19 |
| CS (%) 70℃ | 17 | 18 | 18 | 16 | 13 | 12 |
| CS (%) 100℃ | 21 | 19 | 20 | 22 | 16 | 17 |
| 耐油性 (%) | 15 | 19 | 10 | 10 | 11 | 9 |
| 成形性試験 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| 低温耐衝撃性 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| 長期信頼性 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| 耐光変色性 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |

【0028】

表 2

| 実施例 | | | | | | |
|-------------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| | 7 | 8 | 9 | 10 | 11 | 12 |
| 組成 (重量部) | | | | | | |
| EPDM② | 100 | 200 | 200 | 200 | 200 | 200 |
| B-PP | 10 | 100 | 270 | 50 | 50 | 50 |
| SiH② | 0.5 | 5 | 25 | 1 | 5 | 25 |
| 触媒② | 0.5 | 10 | 80 | 10 | 10 | 10 |
| PP-SEBS | 1 | 5 | 18 | 5 | 5 | 5 |
| OIL | | | 150 | | 50 | 150 |
| 物性 | | | | | | |
| 硬度 | 97 | 87 | 93 | 82 | 67 | 55 |
| TS (MPa) | 23 | 21 | 21 | 20 | 18 | 16 |
| Eb (%) | 200 | 250 | 300 | 370 | 420 | 470 |
| CS (%) -40℃ | 22 | 21 | 22 | 23 | 21 | 21 |
| CS (%) 70℃ | 20 | 19 | 18 | 19 | 13 | 11 |
| CS (%) 100℃ | 25 | 18 | 22 | 20 | 17 | 14 |
| 耐油性 (%) | 15 | 19 | 10 | 10 | 11 | 10 |
| 成形性試験 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| 低温耐衝撃性 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| 長期信頼性 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| 耐光変色性 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |

【0029】

表 3

| 比較例 | | | | | | |
|----------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 |
| 組成 (重量部) | | | | | | |
| EPDM① | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| H-PP | 20 | 50 | 20 | 50 | 20 | 50 |
| DVB | 3 | 3 | | | | |
| DCP | 2 | 2 | | | | |
| SP1045 | | | 5 | 5 | | |
| 塩化第1錫 | | | 2 | 2 | | |
| SiH① | | | | | 7 | 7 |
| 触媒③ | | | | | 7 | 7 |
| OIL | | 100 | | 100 | | 100 |
| 物性 | | | | | | |
| 硬度 | 93 | 64 | 96 | 56 | 95 | 64 |
| TS (MPa) | 10 | 8 | 11 | 10 | 12 | 14 |

| | 19 | | | | | 20 |
|-------------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| E b (%) | 180 | 600 | 240 | 500 | 210 | 530 |
| CS (%) -40℃ | 40 | 30 | 28 | 20 | 25 | 19 |
| CS (%) 70℃ | 30 | 35 | 18 | 21 | 18 | 12 |
| CS (%) 100℃ | 40 | 47 | 28 | 23 | 22 | 19 |
| 耐油性 (%) | 35 | 24 | 17 | 15 | 12 | 10 |
| 成形性試験 | ○ | ○ | ○ | ○ | △ | △ |
| 低温耐衝撃性 | × | × | × | × | × | × |
| 長期信頼性 | × | × | × | × | × | × |
| 耐光変色性 | ○ | ○ | × | × | ○ | ○ |

【0030】

表 4

| | 比較例 | | | | | |
|-------------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| | 7 | 8 | 9 | 10 | 11 | 12 |
| 組成 (重量部) | | | | | | |
| EPDM① | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
| H-PP | 20 | 50 | 20 | 50 | 20 | 50 |
| SiH③ | 7 | 28 | | | | |
| SiH④ | | | 7 | 28 | | |
| SiH⑤ | | | | | 7 | 28 |
| 触媒③ | 7 | 7 | 7 | 7 | 7 | 7 |
| SEBS | 5 | | 5 | | 5 | |
| PP-SEBS | | 5 | | 5 | | 5 |
| OIL | | 100 | | 100 | | 100 |
| 物 性 | | | | | | |
| 硬度 | 93 | 64 | 96 | 65 | 94 | 63 |
| TS (MPa) | 12 | 14 | 18 | 15 | 13 | 11 |
| E b (%) | 230 | 420 | 210 | 400 | 240 | 450 |
| CS (%) -40℃ | 27 | 30 | 29 | 28 | 30 | 28 |
| CS (%) 70℃ | 28 | 27 | 24 | 23 | 28 | 27 |
| CS (%) 100℃ | 32 | 34 | 31 | 32 | 34 | 34 |
| 耐油性 (%) | 15 | 14 | 13 | 11 | 12 | 10 |
| 成形性試験 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| 低温耐衝撃性 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| 長期信頼性 | × | × | × | × | × | × |
| 耐光変色性 | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |

【0031】

【発明の効果】本発明では安定した低クリープ性及び低温耐衝撃性を有する熱可塑性エラストマー組成物を得ることができる。即ち、該エラストマー組成物は熱可塑性でありながら、柔軟性、耐熱クリープ性能、低温耐衝撃性、機械的強度に優れ、広い温度範囲にわたって加硫ゴ*

* ム同等以上のゴム弾性を長期にわたって安定して発現し、さらに耐油性が良好、調色が自由なため、耐油性、ゴム弾性、機械強度及び成形速度、成形歩留まり、調色の自由度等の改善が望まれている自動車部品、家電部品、各種電線被覆（絶縁、シース）及び各種工業部品に好適に成形し用いることができる。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. 6

C08L 53:02

23:08

23:26)

識別記号

庁内整理番号

FI

技術表示箇所